

氏 名	高野 典礼
学 位 の 種 類	博士 (工学)
学 位 記 番 号	博甲第 733 号
学位授与の日付	平成 17 年 3 月 22 日
学位授与の要件	課程博士 (学位規則第 4 条第 1 項)
学位授与の題目	微生物付着担体を用いた農耕地からの窒素流出抑制
論文審査委員 (主査)	池本 良子 (自然科学研究科・助教授)
論文審査委員 (副査)	梶川 康男 (自然科学研究科・教授), 関 平和 (自然科学研究科・教授), 古内 正美 (自然科学研究科・助教授), 川西 琢也 (自然科学研究科・助教授)

学 位 論 文 要 旨

ABSTRACT

Control of nitrogen leaching from the agricultural field is examined using the soil columns in the intermittent rainfall conditions. Nitrification and denitrification occurred in the soil columns. Inoculation of activated sludge in the lower part of soil columns was not effective to control of nitrogen leaching. When supporting medium made up of foamed polypropylene was packed and activated sludge was inoculated in the lower layer of soil columns, the concentration of nitrogen significantly decreased. The activities of sulfur denitrification and sulfate reduction in the soil over the supported medium layer increased. Sulfur oxidation-reduction cycle played an important role in the control of nitrogen leaching.

1. はじめに

農耕地への過剰な施肥に起因する、地下水の硝酸性窒素汚染や湖沼の富栄養化防止のために窒素流出抑制技術の開発は急務である。一方で、近年廃棄物として大量に発生する間伐材の有効利用が求められている。間伐材を炭化した木炭は多孔質であり、微生物付着担体として有効であり、脱窒による窒素流出抑制にも効果があると考えられる。また、間伐材をそのまま土壌へ埋め込むことによって、硫酸塩還元細菌の有機炭素源とし、硫黄の酸化還元サイクルを活性化し、硫黄脱窒による硝酸流出抑制効果をも検討した。

2. 実験方法

2.1 木炭による有機農耕土壌から窒素流出抑制実験

図1に実験に用いた土壌カラムの概要を示す。内径50 mmの亚克力製カラムを用い、カラム底部にはガラス管を取り付けたゴム栓をして、随時流出水を採取できるようにした。ゴム栓の上には土の流出を防止するため100 mmの砂利層を設け、表2の条件でカラムを作成した。土壌は赤玉土と腐葉土を重量比で11:1の割合で混合したものを用い、800 mmの高さになるように詰めた。カラム1は土壌表層100 mmに堆肥5.1 gを混ぜ込んだ。カラム2は堆肥5.1 gを表層に、炭20 gを全体に混ぜ込んだ。カラム3は堆肥5.1 gを表層に、乾燥汚泥5 gを全体に混ぜ込んだ。カラム4は堆肥5.1 gを表層に、炭20 gと乾燥汚泥5 gをそれぞれ全体に混ぜ込んだ。カラム5は土壌下部に炭40 gで層を設け、カラム6は更に下水汚泥4 gにて植種を行った。これらカラムに週2回60 ml (降雨強度5 mm/hrに相当)の表1に示す人工雨を滴下し、週1回カラムからの流出水を全て採取して分析に供した。分析はpH、EC、ORP、TOC、イオンクロマトグラフィによる硝酸塩、フレイム原子吸光によるCaの測定を行った。実験開始22週後に化成肥料1 gの追肥と、恒温室への移動を行った。29週後にカラム1,2,3,4、32週後にカラム5,6を分解し、土壌を4層に分けて取り出し、土に対し、重量比2:5の水で土壌水を抽出して、硝酸塩、亜硝酸塩、硫酸塩、アンモニウム塩、TOCの分析を行った後、土壌微生物活性を測定した。

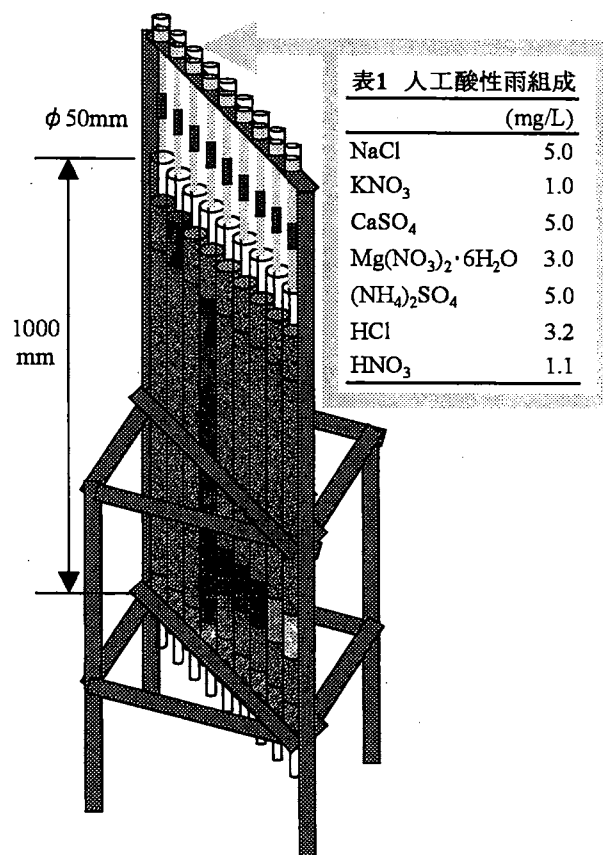


図1 土壌カラム実験装置図

表3 木炭層設置による化学肥料からの窒素流出抑制実験におけるカラムの種類

	1	2	3	4
赤玉土+腐葉土	1224	1068	1068	1068
化学肥料	0.2	0.2	0.2	0.2
杉炭	-	39	-	-
米松炭	-	-	36.7	-
籾殻炭	-	-	-	23.5

(g)

表2 木炭による窒素流出抑制実験における土壌カラムの種類

	1	2	3	4	5	6
赤玉土+腐葉土	1113	1113	1113	1113	939	939
堆肥	5.1	5.1	5.1	5.1	5.1	5.1
汚泥	-	-	-	-	-	4
乾燥汚泥	-	-	5	5	-	-
炭	-	20	-	20	40	40

(g)

2.2 木炭層設置による化学肥料由来の窒素流出抑制実験

図1と同様の実験装置を用い、表3の条件で土壌カラムを作成した。カラム1は土壌のみとした。カラム2は杉の木炭を表層60cm～70cmの間に層を形成して設けた。カラム3は同様に松の木炭で層を形成して設けた。カラム4も同様に珉殻の炭で層を形成して設けた。それぞれのカラムに化学肥料0.2gを表層に添加した。週2回60ml(降雨強度5mm/hrに相当)の人工雨を滴下し、週1回カラムからの流出水を全て採取して分析に供した。分析はpH、EC、ORP、TOC、イオンクロマトグラフィによる硝酸塩、硫酸塩、フレーム原子吸光によるCa、Mg、Na、Kの測定を行った。実験開始92日後には化成肥料としてNaNO₃(32mg-N)水溶液の追肥を行った。同様に136日後に化成肥料としてNaNO₃(320mg-N)と(NH₄)₂SO₄(320mg-N)の水溶液の追肥を行った。実験開始後267日後にはカラムを分解し、炭層上層の土壌を3層に分け、炭層、その下層の土壌をそれぞれ取り出し、土壌水の分析を行った。更に土壌上層部3層を混合し、活性試験を行い、他栄養性脱窒活性、硫黄脱窒活性、硫酸塩還元活性、硝化活性を測定した。

2.3 間伐材と木炭を利用した窒素流出抑制実験

模擬土壌として、赤玉土：腐葉土を重量比50:1で混合し、交換性塩基として0.0024g-CaCO₃/g-soilの炭酸カルシウムを添加したものを用いて土壌カラムを作成した。実験装置の概略図を図2に示す。実験カラムは大型のポリバケツ(内径48cm、高さ50cm)を用いた。カラム1はカラム上端まで模擬土壌だけを充填した。カラム2～4にはカラム底部から5～15cmの層に間伐材及び木炭を模擬土壌に混合した。この実験装置上部から人工雨(表2)を週1回、降雨量5mm/hrで6時間滴下し、下方から週1回流出水を採取し、流量及びイオン濃度を測定した。

3. 実験結果

3.1 木炭による有機農耕土壌からの窒素流出抑制実験

図3に流出水の硝酸塩濃度の経日変化を示す。カラム3,4以外は殆ど硝酸塩が検出されず、降雨中の硝酸塩は脱窒により消失した事がわかる。カラム3,4は乾燥汚泥を大量に添加したことで、乾燥汚泥由来の窒素が流出したと考えられる。炭を混和したカラム4は炭を混和していないカラム3に比べ、硝酸の流出が抑えられている。このことから、土壌への炭の混和は窒素流出抑制に効果的であると考えられる。

表4に木炭による有機農耕土壌からの窒素流出実験におけるカラム土壌の活性を示す。炭を混和したカラム2ではカラム1よりも硫酸塩還元活性、硫黄脱窒活性が高くなった。同様に炭と乾燥汚泥の混和をしたカラム4では、乾燥汚泥のみを添加したカラム3と比べて硫酸塩還元活性、硫黄脱窒活性が高まっている。土

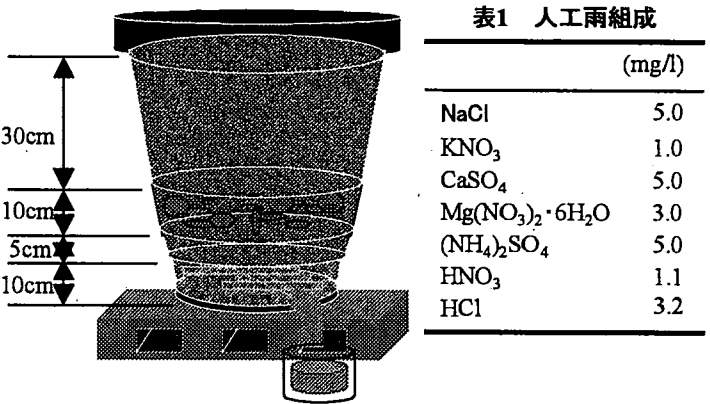


図2 間伐と木炭を利用した窒素流出抑制実験の装置概略図

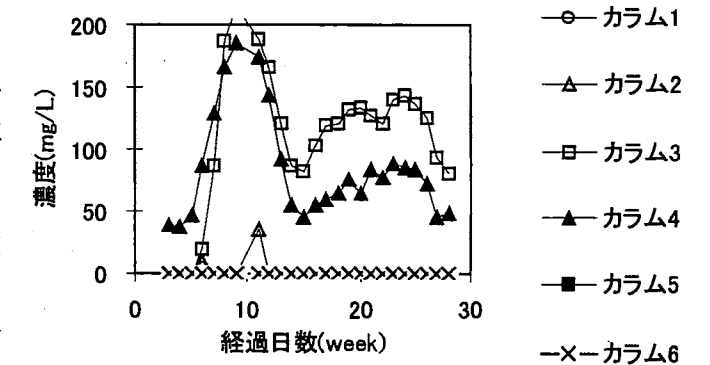


図3 木炭による有機農耕土壌からの窒素流出抑制実験の流出水中の硝酸塩

表4 木炭による有機農耕土壌からの窒素流出抑制実験におけるカラム土壌の活性試験結果

カラム	層	硝化	硫酸塩還元	他栄養性脱窒	硫黄脱窒
1	上層	1.268	0.550	0.088	0.025
	下層	1.872	0.917	0.111	0.004
2	上層	1.810	1.058	0.054	0.054
	下層	2.596	1.505	0.069	0.138
3	上層	1.412	0.612	0.176	-
	下層	1.457	1.060	0.139	0.013
4	上層	1.935	0.909	0.099	0.064
	下層	2.335	0.973	0.122	0.047
5		1.825	1.300	0.120	0.046
6		0.982	0.660	0.132	0.155

単位は全て(mgCOD/g soil·day)

壤下部に木炭層を設けたカラム 5,6 でも硫黄脱窒活性が高まっており、また下水汚泥の植種が硫黄脱窒活性を高めていることが示されている。硫黄脱窒活性が他栄養性脱窒に比較し著しく高まっていることから、炭の混入は硫黄脱窒を促進する効果があるものと考えられる。

3.2 木炭層設置による化学肥料由来の窒素流出抑制実験

図 4 にカラム流出水中の硝酸塩濃度を示す。降雨実験開始後 183 日はいずれのカラムでも硝酸塩は検出されず、肥料中の硝酸塩、降雨中の硝酸塩は溶出しなかった。降雨開始後 92 日目には化成肥料として NaNO_3 (32mg-N) 水溶液の追肥を行ったが、流出水中には硝酸塩は含まれず、これらの肥料は脱窒され、除去されていた。136 日目に追肥として NaNO_3 (320mg-N) と $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ (320mg-N) の水溶液を添加し、168 日目に人工降雨中の硝酸塩濃度を 10 倍に上げ、週 2 回の降雨を毎日降らせることにした。その結果、それぞれのカラムから硝酸塩が流出し、210 日以降、カラム毎

の差が表れ、カラム 2,3,4 で硝酸塩流出が低く抑えられていた。特に杉炭で層を設けたカラム 2 の流出水中の硝酸塩はカラム中最も低く、硝酸塩流出抑制効果が高いことが示された。

表 5 に木炭層設置による化学肥料からの窒素流出抑制実験におけるカラム土壌の微生物活性を示す。特に杉炭で層を設けたカラム 2 での硫黄脱窒活性の高まりが著しく、カラム 2 の硝酸塩流出抑制は硫黄脱窒によるものと考えられる。この要因として、杉炭は松炭に比較し、柔らかく、多孔質であることから、松炭より杉炭の方が微生物付着担体として有効であり、炭層での微生物活性の高まりが、上層の土壌へ硫化物の供給を行うことになり、硫黄脱窒が高まったと考えられる。

3.3 間伐材と木炭による農耕土壌からの窒素流出抑制実験

図 5 に模擬土壌のカラム実験開始前の初期活性を示す。コントロールのカラム 1 よりもカラム 2～4 の硝酸塩濃度が低くなっており、間伐材や木炭の埋め込みによる硝酸性窒素流出抑制の効果が現れている。一方、木炭と間伐材の両方を埋め込んだカラム 4 の流出水の硫酸塩濃度が最も低いことから、硫酸塩還元が進行していることが示唆される。

図 6 に模擬土壌カラム実験の 25 週目までの窒素収支を示す。コントロールであるカラム 1 では、人工雨と化学肥料の投入した窒素分に相当する量が流出しているのに対し、間伐材や木炭を埋め込んだカラム 2,3,4 では、投入分よりも低く抑えられており、窒素流出抑制効果が示されている。

4. 結論

- ・ 木炭の土壌への埋め込みは硫黄脱窒を促進し、窒素流出抑制に効果的であり、特に杉炭の効果が高いことがわかった。
- ・ 化学肥料投入土壌にも木炭埋設は窒素流出抑制に効果的であることが認められた。
- ・ 間伐材にも木炭同様の窒素流出抑制効果が認められた。

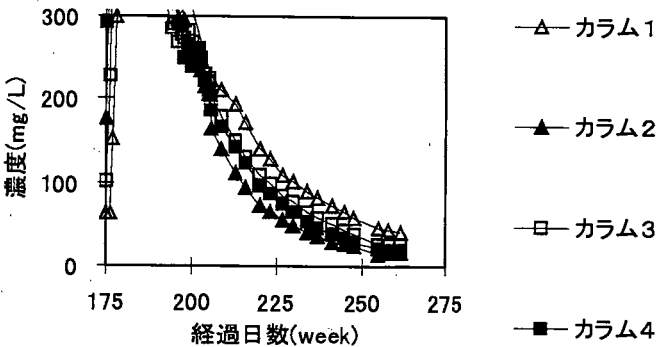


図 4 木炭層設置による化学肥料からの窒素流出抑制実験の流出水中の硝酸塩

表 5 木炭層設置による化学肥料からの窒素流出抑制実験におけるカラム土壌の微生物活性

	硝化	硫酸塩還元	他栄養性脱窒	硫黄脱窒
初期活性	0.2907	0.1692	0.0576	0.0550
カラム 1	1.1637	0.8024	0.1125	0.0991
カラム 2	1.1491	0.8421	0.1109	0.1448
カラム 3	1.3270	0.8283	0.0972	0.0938
カラム 4	1.2206	0.8419	0.1029	0.0859

単位は全て(mgCOD/g soil・day)

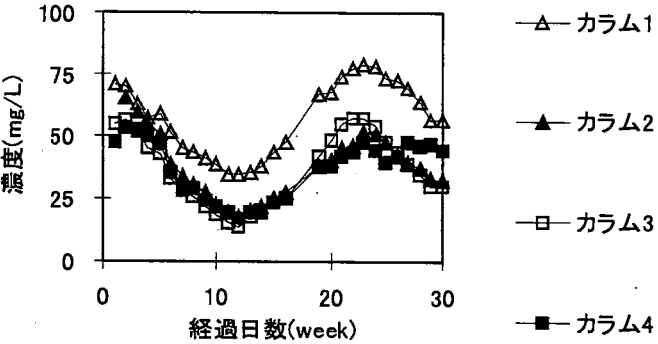


図 5 間伐材と木炭を利用した農耕土壌からの窒素流出抑制実験の流出水中の硝酸塩

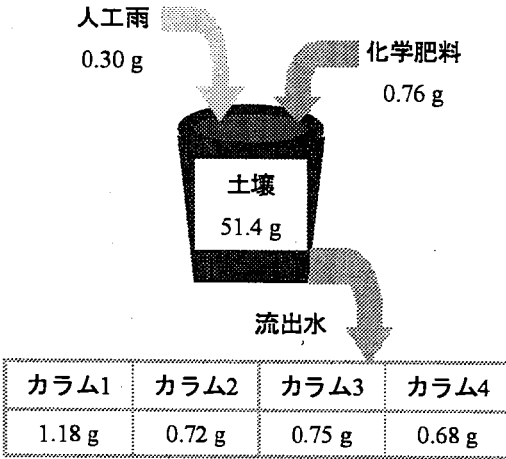


図 6 間伐材と木炭を利用した農耕土壌からの窒素流出抑制実験のカラム毎の窒素収支

学位論文審査結果の要旨

提出された学位論文に関し、平成 17 年 1 月 25 日に第 1 回審査会を、1 月 26 日の口頭発表後に第 2 回審査会を開催し、協議の結果、以下のように判断した。

本論文は、現在大きな社会問題となっている「地下水の硝酸汚染」および「湖沼の富栄養化」の要因である農耕地からの窒素流出を抑制する新しい方法を開発したものである。まず、実際の畑地土壌の調査および自然条件に近い降雨条件の土壌カラム実験を行い、畑地土壌が潜在的な脱窒能を明らかにすることにより、土壌下層部の脱窒能を向上させることの有効性を示した。次にその流出抑制方法として、土壌の作物生育層よりも下層部に発砲 PP や木炭等の生物付着担体を充填した層を形成する方法を提案し、土壌カラム実験によりその有効性を明らかにするとともに流出抑制機構についても検討している。また、応急的対策として、木炭を畑地土壌に混合する方法の有効性も併せて示した。最後に、より効果の高い方法として、間伐材を木炭とともに土壌下層部に埋め込む方法を提案し、大型カラム実験によりその有効性を明らかにしている。

以上のように、本研究では、工学的な手法で土着の微生物を活性化することによって農地からの窒素流出を抑制する新しい方法を提案するとともに、木質系廃棄物の新たな有効利用法を提案したものであり、今後の地下水汚染や富栄養化対策として重要な知見を与えていることから、本論文は博士（工学）の学位に値するものと判断した。